(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

32 DEC 2004

(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



(43) 国際公開日 2003 年12 月31 日 (31.12.2003)

 \mathbb{PCT}

(10) 国際公開番号 WO 2004/000457 A1

(51) 国際特許分類7:

H01M 8/06, C01B 3/40, 31/20

B01J 23/46,

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2002/006279

(22) 国際出願日:

2002 年6 月24 日 (24.06.2002)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

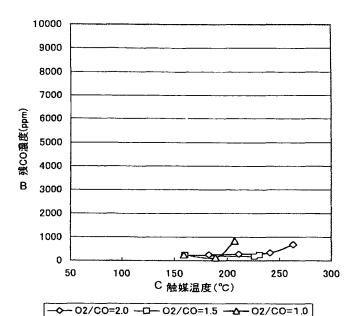
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 田中貴 金属工業株式会社 (TANAKA KIKINZOKU KOGYO K.K.) [JP/JP]; 〒103-0025 東京都 中央区 日本橋茅場 町2丁目6番6号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 香川 勝 (KA-GAWA, Masaru) [JP/JP]; 〒272-0013 千葉県 市川市 高谷 2 0 1 5番地 7 田中貴金属工業株式会社市川工場内 Chiba (JP).

- (74) 代理人: 的場 基憲 (MATOBA, Motonori); 〒113-0033 東京都文京区 本郷 1-3 0-1 7 M・Rビル3 階 的 場国際特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

/続葉有/

- (54) Title: CATALYST FOR SELECTIVE OXIDATION OF CARBON MONOXIDE IN REFORMED GAS
- (54) 発明の名称: 改質ガス中の一酸化炭素の選択酸化触媒

A 実施例2 (担体アルミナ純度99.995%)



- A...EXAMPLE 2 (PURITY OF ALUMINA SUPPORT, 99.995%)
- B...CONCENTRATION OF RESIDUAL CO (ppm) C...CATALYST TEMPERATURE (°C)

- (57) Abstract: A catalyst with which the carbon monoxide contained in a reformed gas is selectively oxidized with oxygen gas. The catalyst for selective oxidation of carbon monoxide comprises a porous support and, deposited thereon, ruthenium and/or platinum, wherein the porous support comprises α -alumina and this alumina has a purity of 99.95% or higher. The ruthenium and/or platinum has a particle diameter of 200 Å or smaller. With this catalyst for selective oxidation of carbon monoxide, the carbon monoxide contained in a reformed gas is diminished through selective oxidation. Thus, the catalyst can realize satisfactory efficiencies of fuel utilization and power generation.
- (57) 要約: 改質ガス中の一酸化炭素を酸素ガスによって選択的に酸化する触媒である。この一は炭素選択酸化触媒は、ルテニウム及び/又は白金を多孔質担体に担持して成り、この多孔質担体がタ9.95%以上である。 ルテニウム及び/こののアルミナを含有し、且のアルミナの純度が99.95%以上である。 ルテニウム及び/この自金の粒子径が、200Å以下である。 この一酸化炭素選択的に酸化して低減し、中の一酸化炭素を選択的に酸化して低減し、良好素選択酸化触媒を提供することができる。



WO 2004/000457 A1



添付公開書類:

一 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、 定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

明細書

改質ガス中の一酸化炭素の選択酸化触媒

技術分野

本発明は、改質ガス中の一酸化炭素を選択的に酸化する触媒に係り、 更に詳細には、低温で作動する燃料電池、特に固体高分子型燃料電池に 用いられる改質ガス中の一酸化炭素を選択酸化する触媒に関する。

本発明の触媒によれば、改質ガス中の一酸化炭素が選択的に酸化されるので、かかる燃料電池を低温においても効果的に作動させることができる。

背景技術

従来、燃料電池用の燃料ガスとしては、コスト面を考慮して、メタンやプロパンなどの天然ガスの炭化水素、メタノール等のアルコール又はナフサ等を水蒸気改質して得られる改質ガスが広く用いられている。かかる改質ガスには、水素や二酸化炭素など以外にも一酸化炭素が含まれており、シフト反応で処理した後であっても、約1 vol%の一酸化炭素が含まれていることが知られている。

かかる副生一酸化炭素は、溶融炭酸塩型などの高温作動型燃料電池では、燃料としても利用されるが、燐酸型や固体高分子型の低温作動型燃料電池では、電極触媒である白金系触媒に対して触媒毒作用を呈し、特に燐酸型燃料電池よりも低温で運転される固体高分子型燃料電池においては、改質ガス中に共存する一酸化炭素による触媒被毒が著しく、発電効率の低下という問題が生じた。

そして、このような問題に対し、従来は、種々の白金族金属を用いた

アルミナ触媒が提案されていた。

しかしながら、かかる白金族金属を用いたアルミナ触媒にあっては、酸素による酸化反応の選択性や活性が低いため、改質ガスの主成分であり燃料ガスとなる水素が同時に酸化浪費されてしまい、燃料利用効率の低下を引き起こすという問題点があった。

また、固体高分子型燃料電池においては、改質ガスを用いながら要求 される発電効率を得るには、共存する一酸化炭素を当初の約1容量%か らその1/100程度以下に低減した後に供給する必要があるが、上記 従来の白金ーアルミナ系触媒では、一酸化炭素の酸化低減が十分でなく、 残留する一酸化炭素により発電効率の劣化を招いていた。

発明の開示

本発明は、このような従来技術の有する課題に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、改質ガス中の一酸化炭素を選択的に酸化して低減し、良好な燃料利用効率や発電効率を実現し得る一酸化炭素選択酸化触媒を提供することにある。

本発明者らは、上記目的を達成すべく鋭意検討を重ねた結果、ルテニウム等を特定の高純度 α アルミナを含有する多孔質担体に担持して用いたところ、酸素ガスが一酸化炭素に対して過剰に存在する条件下で、優れた一酸化炭素の選択的酸化を行うことを見出し、本発明を完成するに至った。

即ち、本発明の一酸化炭素選択酸化触媒は、改質ガス中の一酸化炭素を酸素ガスによって選択的に酸化する触媒であって、

ルテニウム及び/又は白金を多孔質担体に担持して成り、この多孔質 担体がαアルミナを含有し、且つこのアルミナの純度が99.95%以 上であることを特徴とする。 また、本発明の一酸化炭素選択酸化触媒の好適形態は、上記ルテニウム及び/又は白金の粒子径が、200A以下であることを特徴とする。

本発明の選択酸化触媒が、一酸化炭素(CO)の優れた選択酸化性を 発揮する理由の詳細は必ずしも明らかではないが、現時点では以下のよ うに推察される。

即ち、本発明では、特定の多孔質担体を用いることにより、触媒金属であるルテニウム(Ru)及び/又は白金(Pt)が該担体の最表面近傍に(細孔外に)存在するようにした。

αアルミナはγアルミナなどと異なり、微細な細孔を持っていない。 そのため担持された触媒金属であるルテニウム(Ru)及び/又は白金 (Pt)は、比較的ガスと接触し易い表面に存在するようになる。

このように、触媒金属をアルミナ表面に局在化させることによって、 COの酸化が起こる温度を低温側にシフトさせることができ、他の反応 に対する選択性を向上でき、これにより、反応後の改質ガス中のCO濃 度を低減させ、且つ水素の消費を防ぐことができるものと思われる。

また、本発明では、αアルミナを多孔質担体として好適に使用でき、 このαアルミナは上述した触媒金属の表面局在化を実現し得るが、これ 以外にも、γアルミナやシリカの代わりにαアルミナを使用することに より、反応ガス中に含まれる水蒸気の影響を減らすことができる。

一般に、ガス中に水蒸気が混入することにより水蒸気吸着が起こり、COの酸化が起こる温度が高温側にシフトされるが、αアルミナを用いることにより、その吸着による反応温度の高温側へのシフトを回避できる。この結果、CO酸化の選択性を向上させることができ、反応後の改質ガス中のCO濃度を低減させ、水素の消費を防ぐことができるものと考えられる。

更に、本発明の選択酸化触媒は極めて高純度のαアルミナを担体とし

て用いることにより、初めて高いCO酸化活性を発現し得るため、αアルミナにRu又はPtなどの触媒活性貴金属種以外の金属及び金属酸化物(例えば、Na、Siなど)が含有されると、反応ガスの吸着形態が変化し活性が大きく阻害されると考えられる。

以下、本発明の一酸化炭素選択酸化触媒について詳細に説明する。なお、本明細書において、「%」は特記しない限り質量百分率を示すものとする。

上述の如く、本発明の一酸化炭素選択酸化触媒は、改質ガス中のCOを酸素ガスによって選択的に酸化する触媒である。

ここで、改質ガスとは、一般にメタンやプロパン等の炭化水素、メタ ノール等のアルコール又はナフサ等を水蒸気改質して得られるガスをい い、代表的に、メタノール改質ガスは水素ガスを主成分とし、二酸化炭 素(CO₂)、メタン(CH₄)、水(H₂O)及びCOを含む。

なお、本発明の適用対象として効果的なものは、これらのうちでもシフト反応後の改質ガスであって、CO濃度が1 v o 1 %程度のものである。

次に、酸素ガスは、COとの反応当量よりも過剰に存在すれば特に限定されるものではないが、代表的には、COとの反応当量の1.1~5倍の酸素を存在させることが好ましい。

1. 1倍未満では、酸化されないCOが残留し、5倍を超えると、水素の消費量が増大することがあり、好ましくない。

また、本発明のCO選択酸化触媒は、Ru若しくはPt、又はRuとPtの混合物を、 α アルミナを含有する多孔質担体に担持して成る。

ここで、Ruは優れた酸化触媒性能を有し、酸素によるCOの選択酸化を担うが、同様に酸化触媒性能を有するPtを混入することも可能である。

上記多孔質担体に含まれるαアルミナは、超高純度であることを要し、 具体的には、そのアルミナ濃度が99.95%以上であることを要する。 なお、多孔質担体中にNaやSiやFeなどの不純物がどのような状態 でも数100ppm程度混入すると触媒活性において好ましくない。

また、本発明のCO選択酸化触媒は、RuとPtを0.01~10%の割合で含有することが好ましい。即ち、RuとPtの混合物の担持量は、得られる触媒全体の0.01~10%とすることが好ましく、望ましくは0.02~0.5%とすることがよい。

上記混合物の担持量が 0.02%未満では、COの酸化活性が十分でないことがあり、0.5%を超えると、Ru、Ptが有効に利用されないことがある。

更に、本発明の選択酸化触媒では、担持されているRu及びPtの少なくとも一方の粒子径が200Å以下、望ましくは5~200Åであることが好ましい。

粒子径が200Åを超えると、COの酸化活性が十分でなくなることがあり、好ましくない。

また、上記多孔質担体としては、Ru、Pt、Ru-Pt混合物とガスの接触が効率良く起こるために、あまり小さな細孔系を有する担体は好ましくない。Ru等が担体細孔内に担持されている場合は、ガスの接触効率が低下し、所期の効果が得られないことがある。

上述のように、本発明の選択酸化触媒においては、αアルミナを担体として好適に使用できるが、この理由は、αアルミナは上述の表面担持を容易に実現するからであり、また、上述のように水蒸気の影響を低減できるからである。

なお、αアルミナを単独で用いてもよいが、その他の結晶系のアルミナと併用することも可能である。

また、γアルミナは、1000℃以上の温度で保持すればαアルミナに転移するが、その温度に保つと触媒金属であるRuやPtがシンタリングを起こし、十分な活性が得られなくなるので、本発明の触媒に単独で用いるのには適していない。但し、触媒活性種であるRu、Ptなどを担持する前にγ,θ,ηなどのアルミナを熱処理しαアルミナに相転換させた後に担体して用いることや、上述の特性を満足する様々な結晶系の高純度アルミナとαアルミナを併用することは可能である。

本発明の選択酸化触媒は、上述のような構成を有し、優れたCO選択酸化性を有するが、代表的には、改質ガス中に共存する1 v o 1 %程度のCOを100ppm程度に酸化除去する。

なお、使用条件も特に限定されるものではないが、空間速度(SV)を30, $000h^{-1}$ 以下、触媒温度を $100\sim200$ Cとすれば、顕著な効果が得られる。

また、触媒形態も特に限定されるものではなく、粒状やペレット状、 モノリス状とすることが可能であり、更には、コージェライト製や金属 製などのハニカム状の一体構造型担体にコートして用いることも可能で ある。

図面の簡単な説明

図1は、本発明のCO選択酸化触媒の一例の触媒活性を示すグラフ、 図2は、本発明外のCO選択酸化触媒の触媒活性を示すグラフである。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明を実施例及び比較例により更に詳細に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

[性能評価]

以下の実施例及び比較例において、得られた触媒の性能は下記の手法 で評価した。

(評価条件等)

評価装置;固定床流通型

 $SV : 30000h^{-1}$

CO濃度;1容量%

O2/CO; 2. 0, 1. 5, 1. 0 (容量比)

水素濃度;40%

水蒸気濃度;約30%

二酸化炭素濃度;20%

メタン濃度;2.5%

反応温度;100~250℃

(触媒金属の担持粒子径)

触媒を粉砕して、透過型電子顕微鏡により担持金属を直接観察して、 その粒径を確認した。

(触媒金属の表面濃度)

触媒の表面をXPSで観察し、表面の貴金属濃度を確認した。

(触媒金属の担持分布)

触媒をほぼ半分に割り、その断面をEPMAにより観察して担持幅を確認した。

(実施例1) ·

平均粒径が 2 mm程度の超高純度 α アルミナ (アルミナ濃度 9 9 . 9 9 5 %) に R u を約 0 . 2 % 担持させて本例の選択酸化触媒 A を得た。

この選択酸化触媒に、 $1 \vee 0 1\%$ の一酸化炭素を含む改質ガスに酸素を $2.0 \vee 0 1\%$ 分投入した試験ガスを $5 \vee = 30000 \, h^{-1}$ で通過させたところ、触媒層温度が $100 \vee \sim 250 \vee 0$ の範囲において、CO濃

度は100ppm以下に低減された

(実施例2)

平均粒径が2mm程度の超高純度αアルミナペレット(アルミナ濃度 99.995%以上)に、Ruを2g/1の割合で担持し、本例の選択酸化触媒を得た。

この選択酸化触媒に、 O_2/CO が容量比で2、1.5及び1の試験ガスを150 \mathbb{C} 、 $SV=60000h^{-1}$ 供給し、残余のCOガス濃度を測定した。得られた結果を図1に示す。すべての O_2/CO において、COの酸化は150 \mathbb{C} 付近で開始され、COは100から200ppmまでに低減されていた。

(比較例1)

平均粒径が2mm程度のαアルミナ(アルミナ濃度99.9%)にRuを2g/1の割合で担持して本例の選択酸化触媒を得た。

この選択酸化触媒に、 O_2/CO が容量比で2、1.5及び1の試験ガスを150 \mathbb{C} 、 $SV=60000h^{-1}$ で供給し、残余のCOガス濃度を測定した。得られた結果を図2に示す。すべての O_2/CO において、COの酸化は150 \mathbb{C} 付近で開始されるが、COは2000 p p m以下までには低減されなかった。

(比較例2)

平均粒径が2mm程度のγアルミナ(アルミナ濃度99.995%以上)にRuを約0.2%担持させて本例の選択酸化触媒を得た。この触媒において、Ruはアルミナの細孔内部にまで担持されていた。また、Ruの表面濃度はαアルミナを用いたものよりも低かった。

この触媒に、1 vo 1%の一酸化炭素を含む改質ガスに酸素を 2.0 vo 1%分投入した試験ガスを $S \text{ V} = 60000 \text{ h}^{-1}$ で通過させたところ、触媒層温度が 140%近辺において C O酸化が開始され、 150%

でCOは2000ppm程度まで低減され、それ以上の温度域でCO濃度は温度の上昇とともに1000ppm程度まで低下した。

以上、本発明を好適実施例により詳細に説明したが、本発明はこれら 実施例に限定されるものではなく、本発明の開示の範囲内において種々 の変形実施が可能である。

例えば、本発明の選択酸化触媒の用途は、固体高分子型燃料電池に供給される改質ガスに限定されるものではなく、他の改質ガス中のCOの低減にも利用可能であり、高純度水素ガスを必要とするアンモニアの合成などの各種プロセスにも適用可能である。

産業上の利用可能性

以上説明してきたように、本発明によれば、ルテニウム等を特定の高純度 α アルミナを含有する多孔質担体に担持して用いこととしたため、改質ガス中の一酸化炭素を選択的に酸化して低減し、良好な燃料利用効率や発電効率を実現し得る一酸化炭素選択酸化触媒を提供することができる。

例えば、本発明の触媒を用いることにより、改質ガス中に1 v o 1 % 程度存在する一酸化炭素を過剰量の酸素の存在下150℃程度で反応させれば、一酸化炭素濃度を0.1 v o 1 %以下に低減することができる。

請求の範囲

1. 改質ガス中の一酸化炭素を酸素ガスによって選択的に酸化する触媒であって、

ルテニウム及び/又は白金を多孔質担体に担持して成り、この多孔質 担体がαアルミナを含有し、且つこのアルミナの純度が99.95%以 上であることを特徴とする一酸化炭素選択酸化触媒。

2. 上記ルテニウム及び/又は白金の粒子径が、200Å以下であることを特徴とする請求項1に記載の一酸化炭素選択酸化触媒。

図1. 実施例2 (担体アルミナ純度99.995%)

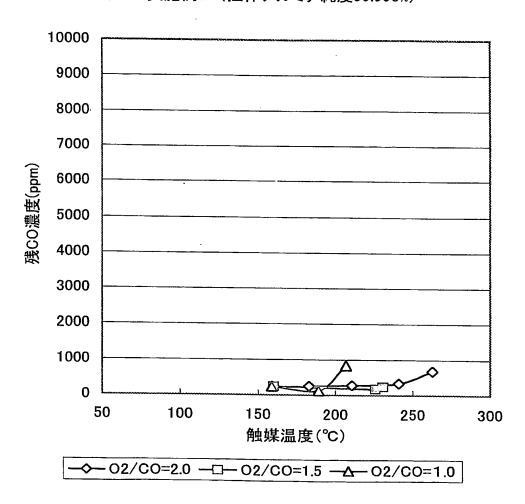
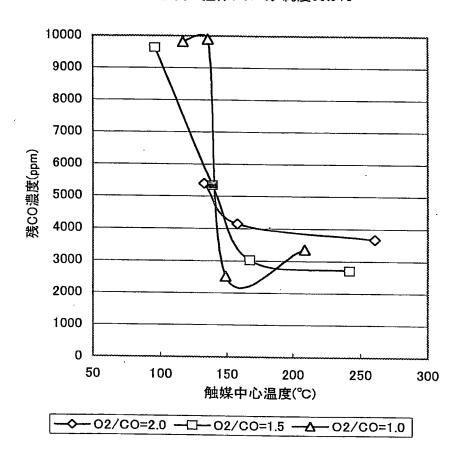


図2. 比較例1.担体アルミナ純度99.9%





Internal application No.
PCT/JP02/06279

A. CLASS	A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER			
	Int.Cl ⁷ B01J23/46, H01M8/06, C01B3/40, 31/20			
	. ,	•		
According to	According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC			
B. FIELDS	S SEARCHED			
	ocumentation searched (classification system followed	by classification symbols)		
	C1 ⁷ B01J21/00-38/74, H01M8/06,			
ŀ				
December	ion searched other than minimum documentation to the	and and the description of the land of	in the fields seembed	
	yo Shinan Koho 1926–1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho		
	i Jitsuyo Shinan Koho 1971-2002	Jitsuyo Shinan Toroku Koho		
<u> </u>				
	ata base consulted during the international search (nam	e of data base and, where practicable, sear	rch terms used)	
JICS	T FILE(JOIS), WPI(DIALOG)			
<u> </u>				
C. DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category*	Citation of document, with indication, where ap	propriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	
A	JP 2001-17861 A (Tanaka Kiki	nzoku Kogyo	1-2	
1	Kabushiki Kaisha),			
	23 January, 2001 (23.01.01),			
	Claims			
	(Family: none)			
		,		
A	JP 2001-212458 A (Tanaka Kik	inzoku Kogyo	1-2	
	Kabushiki Kaisha et al.),			
1	07 August, 2001 (07.08.01),			
	Claims			
	(Family: none)			
1				
× Furth	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.		
Specia	l categories of cited documents:	"I" later document published after the inte	emational filing date or	
"A" docum	ent defining the general state of the art which is not	priority date and not in conflict with t	he application but cited to	
	ered to be of particular relevance document but published on or after the international filing	"X" document of particular relevance; the		
date		considered novel or cannot be considered	ered to involve an inventive	
	nent which may throw doubts on priority claim(s) or which is o establish the publication date of another citation or other	step when the document is taken alone document of particular relevance; the		
special	l reason (as specified)	considered to involve an inventive ste		
1	ent referring to an oral disclosure, use, exhibition or other	combined with one or more other sucl		
	means combination being obvious to a person skilled in the art document published prior to the international filing date but later "&" document member of the same patent family			
than the priority date claimed				
Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report				
17 S	September, 2002 (17.09.02)	08 October, 2002 ((08.10.02)	
Name and n	nailing address of the ISA/	Authorized officer		
	nnese Patent Office		•	
Facsimile N	lo.	Telephone No.		



Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 00/17097 A (STICHTING ENERGIEONDERZOEK CENTRUM NEDERLAND), 30 March, 2000 (30.03.00), Claims; description, page 3, lines 10 to 18 & JP 2002-526358 A Claims; description, page 5, lines 21 to 29 & AU 5885099 A & EP 1115651 A & NO 20011404 A	1-2
A .	JP 4-59048 A (Petroleum Energy Center et al.), 25 February, 1992 (25.02.92), Claims & DK 118191 A	1-2



Α.	発明の属する分野の分類	(国際特許分類	(IPC)	١

Int. Cl. 7 B01J 23/46, H01M 8/06, C01B 3/40, 31/20

調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl. 7 B01J 21/00-38/74, H01M 8/06, C01B 3/40, 31/20

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1926-1996年

日本国公開実用新案公報

1971-2002年

日本国登録実用新案公報 日本国実用新案登録公報

1994-2002年 1996-2002年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

JICSTファイル (JOIS), WPI (DIALOG)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の		
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2001-17861 A(田中貴金属工業株式会社)2001.01.23, 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1-2
A	JP 2001-212458 A(田中貴金属工業株式会社,他1名)2001.08. 07,特許請求の範囲(ファミリーなし)	1-2
A	WO 00/17097 A(STICHTING ENERGIEONDERZOEK CENTRUM NEDERLAND) 2000.03.30, 特許請求の範囲, 明細書第3頁第10~18行&JP 2002-526358 A, 特許請求の範囲, 明細書第5頁第21~29行&AU 5885099 A&EP 1115651 A&NO 20011404 A	1-2

|×| C欄の続きにも文献が列挙されている。

□ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

17.09.02

国際調査報告の発送日

08.10.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 特許庁審査官(権限のある職員) 関 美祝

4 G 9045

電話番号 03-3581-1101 内線 3416



国際出願番号 PCT/JP02/06279

1.00 -1.4:1 -	関連すると認められる文献		
用文献の ファゴリー*		関連する 請求の範囲の番号	
A	JP 4-59048 A(財団法人石油産業活性化センター,他1名)1992.0 2.25,特許請求の範囲&DK 118191 A	1-2	
	·		